

生物膜電極を用いた嫌気性アンモニア酸化処理に関する基礎的研究

早稲田大学 学生会員 岡森 弘樹

早稲田大学 学生会員 ○葛西 佑哉

早稲田大学 正会員 榊原 豊

1. 緒言

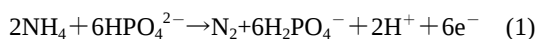
閉鎖性水域の富栄養化問題が慢性化しつつあり、下排水中に含まれる窒素、リン成分等の効率的除去が必要とされている。下排水中の窒素分は主として NH_4^+-N で存在し、我が国では硝化・脱窒プロセスが主流となっている。本プロセスは NH_4^+-N 処理法として優れた性能を有するが、ばっ気操作や汚泥処理が必要で比較的成本高である。

本研究では、生物膜電極を用いて電子を回収しながら NH_4^+-N を直接 N_2 ガスへ酸化処理する新規嫌気性処理法の可能性について検討した。また、正・負電極間に電圧を印加することで、処理速度を向上させることの可能性についても検討を加えた。

2. 仮定した反応プロセス

本研究で仮定した反応プロセスを式(1)、(2)に示す。また、その概略をFig.1に示した。

《負極》嫌気性条件下で NH_4^+-N が N_2 へ酸化処理され、その時に生じる電子を負電極によって回収する。回収した電子は正電極へ伝達される。なお、正・負電極間における電子の輸送は緩衝剤として用いている H_2PO_4^- 並びに HPO_4^{2-} によって行われていると仮定した。



《正極》負電極から伝達された電子によって正極溶液中に存在する $[\text{Fe}(\text{CN})_6]^{3-}$ が $[\text{Fe}(\text{CN})_6]^{4-}$ へ還元される。

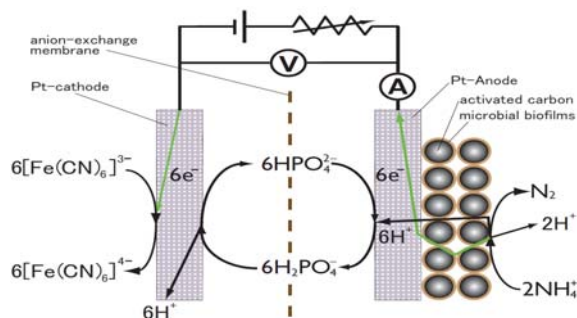
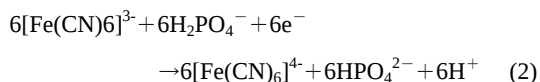


Fig.1 仮定した反応プロセス

3. 実験装置及び方法

3つの同様な実験装置(R1~R3)を作製し、R1とR2に活性汚泥及び消化汚泥よりなる混合汚泥を接種した。R3は接種せず、リファレンスとした。各装置の正・負極槽は陰イオン交換膜（株式会社アストム AMX 標準膜）によって隔離した。負極槽には導電性微生物担体として活性炭あるいは炭素繊維を充填した。なお、正・負極溶液は半回分的に供給し、処理後の正・負極溶液は処理中に発生した気体とともにテドラーバック内に回収した。装置本体は水中に浸漬すると共に光を遮断した。負極への供給溶液は NH_4^+-N を90mg/l含んでいる。実験条件をTable 1に示した。

Table 1 実験条件

装置	正極			負極			活性炭	種汚泥	電圧の印可
	状態	実容積	HRT	状態	実容積	HRT			
R1									
R2	嫌気	1L	1週間	嫌気	0.5L	1週間	875 cm ³ (635g)	活性汚泥並びに消化汚泥 (各種 250mL)	0.25V
R3								non	0.25V

4. 実験結果及び考察

4.1 電子回収量の解析値

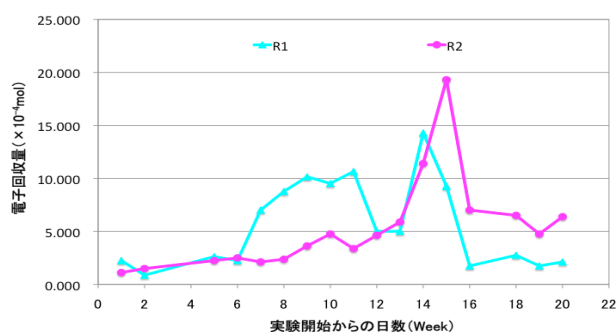


Fig.2 生物学的現象に起因する電子回収量の解析値

生物膜電極の正・負電極間においては物理学的現象（電気泳動現象並びに拡散現象）及び生物学的現象（仮定した反応プロセス）に起因する電流の合計値が測定されると仮定し、R1並びにR2において生物学的現象に起因する電流

キーワード 生物膜電極、MFC、アンモニア性窒素、嫌気性処理、フェリシアンナイド

連絡先 早稲田大学大学院創造理工学研究科建設工学専攻榊原研究室 〒169-8555 東京都新宿区大久保 3-4-1、sakaki@waseda.jp

値を以下の (3)、(4) 式に従って解析した。

$$I_2 - I_3 = I_{2-bio} \quad (3), \quad I_1 - I_{1-analytic \text{ value}} = I_{1-bio} \quad (4)$$

ここで、 I_1 : R1 において測定された電流の平均値、 I_2 : R2 において測定された電流の平均値、 I_3 : R3 において測定された電流の平均値、 $I_{1-analytic \text{ value}}$: R1 において物理学的現象に起因する電流値 (平均解析値)、 I_{1-bio} : R1 において生物学的現象に起因する電流値、 I_{2-bio} : R2 において生物学的現象に起因する電流値である。なお、 $I_{1-analytic \text{ value}}$ は R3 において電圧を印加しない場合に測定された実測値と概ね等しかった。解析より得られた生物学的現象に起因する電子回収量を Fig.2 に示す。図より、廃水中から電子を回収することは可能であったが、生物膜電極の正・負電極間に 0.25V の電圧を印加した R2 の結果と R1 とはほぼ同様であり、本実験条件下では電圧印加により処理速度を向上させることはできなかった。

4. 2 窒素ガス量

微生物添加系である R1 並びに R2 においてはテドラーバック内に気体が回収された。回収された気体の組成を Figs.3, 4 に示した。図より、テドラーバック内の N_2 ガス組成は空気中における N_2 ガス組成 (78%) よりも比較的大きな値を示している。一方で、テドラーバック内の O_2 ガス組成は空気中において O_2 ガス組成が占める割合 (21%) よりも比較的小さな値を示している。従って、嫌気性条件下に維持された生物膜電極の負極槽において、なんらかの生物学的反応によって N_2 ガスが発生した可能性が推察された。

4. 3 化学量論関係

仮定した反応プロセス (1)、(2) 式より導出される化学量論関係と、実験値より得られた化学量論関係を Table 2 に示した。電流値と発生窒素量に関する理論値と実験値は比較的近い値であった。

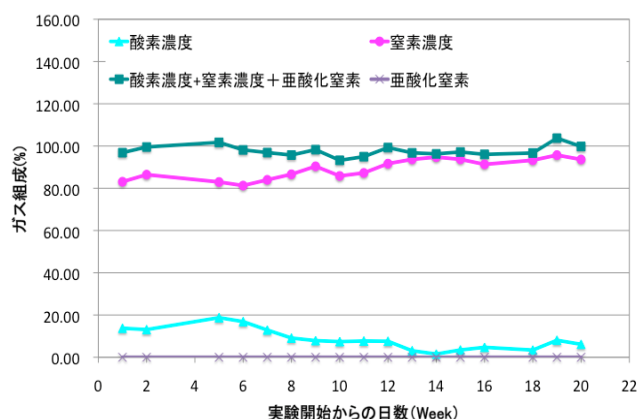


Fig.3 テドラーバック内から測定された気体の組成 (R1)

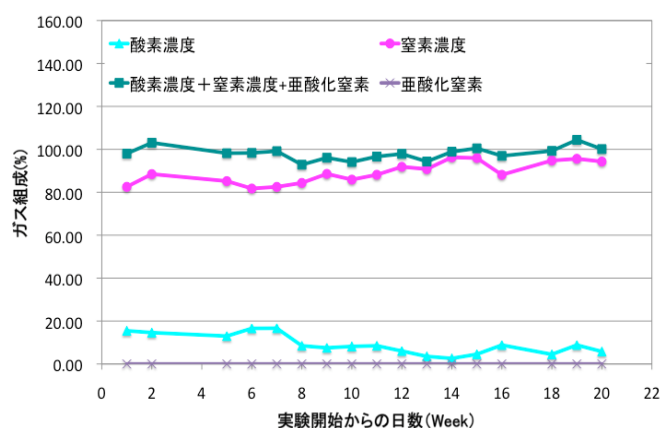


Fig.4 テドラーバック内から測定された気体の組成 (R2)

Table 2 化学量論関係の比較

理論値	実験値	
	R1	R2
$NH_4^+ : N_2 = 2 : 1$	$NH_4^+ : N_2 = 2.9 : 1$	—
$NH_4^+ : e^- = 1 : 3$	$NH_4^+ : e^- = 1 : 4.9$	—
$N_2 : e^- = 1 : 6$	$N_2 : e^- = 1 : 7.7$	$N_2 : e^- = 1 : 6.6$
$[Fe(CN)_6]^{3-} : e^- = 1 : 1$	$[Fe(CN)_6]^{3-} : e^- = 0.98 : 1$	$[Fe(CN)_6]^{3-} : e^- = 2.2 : 1$

なお、R2 の負極槽内における $NH_4^+ - N$ の減少量は極めて少なく、 $NH_4^+ - N$ と N_2 並びに $NH_4^+ - N$ と電流値との関係を求めることはできなかった。

5. 結言

以上の結果から以下の知見を得た。

- ・生物膜電極の負極槽より、微量ではあるが N_2 を主成分とするガスが回収された。
- ・仮定した反応プロセスより導き出される化学量論比と実験値より導き出される化学量論比は比較的近い値を示した。
- ・本実験条件下で 0.25V の電圧を生物膜電極の正・負電極間に印加することによりプロセスの高速化を図ることはできなかった。

なお、本実験条件下での NH_4^+ 減少量、 N_2 量は充分に大きくなく、さらに培養を継続して検討を行う予定である。

謝辞

本研究の一部は早稲田大学特定課題研究 200813-191 の補助を受けて実施した。

参考文献

- 1) D.R.Lovely et al. (2003) Electricity Generation by Direct Oxidation of Glucose in Mediatorless Microbial Fuel Cells. Nature Biotechnology, **21**, 1229-1232.